

**Family list**

2 family members for:

**JP62187759**

Derived from 2 applications.

Back to JP62187759

- 1 **Novel thermoplastic polyester compositions having improved impact behaviour.**  
Publication info: EP0180472 A2 - 1986-05-07
- 2 **HIGH SHOCK BEHAVIOR NOVEL THERMOPLASTIC POLYESTER COMPOSITION**  
Publication info: JP62187759 A - 1987-08-17

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

## HIGH SHOCK BEHAVIOR NOVEL THERMOPLASTIC POLYESTER COMPOSITION

Publication number: JP62187759

Publication date: 1987-08-17

Inventor: DONARU MAKUNARI; EICHI RESURII RANIIBU

Applicant: CELANESE CORP

Classification:

- international: C08L7/00; C08L21/00; C08L33/00; C08L33/02;  
C08L51/04; C08L67/00; C08L67/02; C08L7/00;  
C08L21/00; C08L33/00; C08L51/00; C08L67/00; (IPC1-  
7): C08L51/04; C08L67/02

- european: C08L51/04; C08L67/02

Application number: JP19850245281 19851031

Priority number(s): US19840666685 19841031

Also published as:

 EP0180472 (A2)

Report a data error here

Abstract not available for JP62187759

Abstract of corresponding document: EP0180472

Novel thermoplastic polyester compositions having improved impact behavior are produced. These compositions consist essentially of a blend of polybutylene terephthalate, having an intrinsic viscosity between about 0.4 and about 1.0 deciliters per gram as determined in orthochlorophenol at 25 DEG C, with above 20% and up to 30% of a butadiene-based multiphase composite polymer.

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報(A)

昭62-187759

⑫ Int. Cl.<sup>4</sup> 識別記号 庁内整理番号 ⑬ 公開 昭和62年(1987)8月17日  
 C 08 L 67/02 LPB 6904-4J  
 //(C 08 L 67/02 51:04) 1 0 1 審査請求 未請求 発明の数 1 (全5頁)

⑭ 発明の名称 衝撃挙動にすぐれた新規熱可塑性ポリエステル組成物

⑮ 特 願 昭60-245281

⑯ 出 願 昭60(1985)10月31日

⑰ 優先権主張 ⑱ 1984年10月31日⑲ 米国(US)⑳ 666685

⑳ 発 明 者 ドナル・マクナリ, アメリカ合衆国ニュージャージー州、チャサム、マウンテン・アベニュー62番地  
 ㉑ 発 明 者 エイチ・レスリー・ラニアップ, アメリカ合衆国ニュージャージー州、ウォレン、ロバート・ロード14番地  
 ㉒ 出 願 人 セラニーズ・コーポレーション, アメリカ合衆国ニューヨーク州、ニューヨーク、アベニュー・オブ・ザ・アメリカス1211番地  
 ㉓ 代 理 人 弁理士 広 瀬 章一

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

衝撃挙動にすぐれた新規熱可塑性ポリエステル組成物

## 2. 特許請求の範囲

(1) 本質的に下記(4)と(4)とのブレンドよりなる衝撃挙動にすぐれた熱可塑性ポリエステル組成物:

(a) 少なくとも約20重量%の、固有粘度が約0.4~1.0 dl/gのポリブチレンテレフタレート; および

(b) ポリブチレンテレフタレートに基づいて20重量%を超え、約30重量%以下の量のブタジエン系多相複合ポリマー。

(2) 前記熱可塑性ポリエステル組成物が、少なくとも約60重量%のポリブチレンテレフタレートを含有するものである、特許請求の範囲第1項記載の組成物。

(3) ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1~100 重量%の量のガラス強化繊維をさらに含有する、特許請求の範囲第1項または第2項記載の

組成物。

(4) ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1~200 重量%の芳香族ポリカーボネートをさらに含有する、特許請求の範囲第1項~第3項のいずれかに記載の組成物。

(5) ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1~200 重量%のポリアリレートをさらに含有する、特許請求の範囲第1項~第4項のいずれかに記載の組成物。

(6) 前記ブタジエン系多相ポリマーが、ASTM D528 試験法により測定して破壊形式が延性破壊となるのに十分な量で存在している、特許請求の範囲第1項~第5項のいずれかに記載の組成物。

(7) 前記ブタジエン系多相ポリマーが、ポリブタジエンもしくはポリブタジエン/スチレンの無性コポリマーと、ポリメチルメタクリレートの熱可塑性シムル相とを有するものである、特許請求の範囲第1項~第5項のいずれかに記載の組成物。

(8) ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1~100 重量%の不活性充填材をさらに含有する、

## 特開昭62-187759 (2)

特許請求の範囲第1項～第7項のいずれかに記載の組成物。

(9) ポリブチレンテレフタレートに基づいて25重量%までの硬化剤をさらに含有する、特許請求の範囲第1項～第8項のいずれかに記載の組成物。

(10) 本質的に下記(Ⅳ)と(Ⅴ)とのブレンドよりなる、特許請求の範囲第1項記載の衝撃挙動にすぐれた熱可塑性ポリエステル組成物：

Ⅳ 固有粘度約0.4～1.0 dl/gのポリブチレンテレフタレート少なくとも約60重量%；および

Ⅴ ポリブチレンテレフタレートに基づいて20重量%を超え、約30重量%以下の量の、ポリブタジエンもしくはポリブタジエン/スチレンの弾性コア相と、ポリメチルメタクリレートの高可塑性シエール相とを有するブタジエン系多相混合ポリマー（ただし、ブタジエン系多相ポリマーはASTM D 526 試験法により測定して硬塊形式が延性破断となるのに十分な量で存在している）。

(11) ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1～100 重量%の量のガラス強化繊維をさらに含有

している特許請求の範囲第10項記載の組成物。

(12) ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1～200 重量%の芳香族ポリカーボネートをさらに含有している、特許請求の範囲第10項または第11項記載の組成物。

(13) ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1～200 重量%のポリブチレンテレフタレートをさらに含有している特許請求の範囲第10項～第12項のいずれかに記載の組成物。

## 3. 発明の詳細な説明

## (産業上の利用分野)

本発明は、熱可塑性ポリエステル組成物の製造に関する。

## (従来の技術)

ポリエチレンテレフタレート (PET) またはポリブチレンテレフタレート (PBT) のようなポリ (C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキレンテレフタレート) は、成形用途を始めとする多くの用途に有用な固形の樹脂である。かかる樹脂は、衝撃強度、耐ソリ性、耐燃性、および熱安定性などの特性を改善するた

めに各種の添加剤が配合されることが多い。米国特許第 4,819,353; 4,096,202; および 4,034,013 号には、ポリアルキレンテレフタレートに使用することが示唆されたある種の耐衝撃性改良剤が記載されている。米国特許第 4,180,494; 4,196,134; および 4,393,153号は、ある種のポリアルキレンテレフタレート成形材料に使用するための、ある種の耐衝撃性改良剤とある種の製の化合物、たとえば、それぞれポリカーボネート、ジエポキシド、およびポリエチレンテレフタレートとを併用することを記載している。

## (発明が解決しようとする問題点)

しかし、さらに一層改善された衝撃挙動を示すポリアルキレンテレフタレート成形材料に対する探究がなお続けられている。本発明は、かかる研究の結果としてなされたものである。

よって、本発明の目的は、成形品の製造に適した改善された熱可塑性ポリエステル組成物、ならびにかかる組成物、すなわち成形材料からの成形品の製造方法およびかかる組成物から得られた成

形品を提供することである。既知の従来の成形材料に比べて、本発明の成形品は他の望ましい特性を低下させずにすぐれた衝撃挙動を示すなど、望ましい組合せの特性を示す。

## (問題点を解決するための手段)

本発明の一般的な態様によると、本質的に下記ⅣとⅤとのブレンドよりなる熱可塑性ポリエステル組成物が提供される：

Ⅳ 少なくとも約20重量%の、固有粘度 (α-クロロフェノール中25℃で測定) が約0.4～1.0 dl/gのポリブチレンテレフタレート；および

Ⅴ ポリブチレンテレフタレートに基づいて20重量%を超え、約30重量%以下の量のブタジエン系多相混合ポリマー。

本発明の1好適態様において、前記熱可塑性ポリエステル組成物は、少なくとも約60重量%のポリブチレンテレフタレート (PBT) と、20重量%を超え、30重量%以下の量のブタジエン系多相ポリマーとから本質的になり、後者の成分 (多相ポリマー成分) は、ASTM D256 法による測定で硬

## 特開昭62-187759 (3)

塊形式が脆性破壊となるのに十分な量でポリエステル組成物中に存在させる。さらに別の好適態様において、後述するような好ましいブタジエン系多相ポリマーのほかに、ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1〜100重量%の量のポリカーボネート樹脂および/またはガラス強化繊維が使用される。

本発明の主要な特徴は、一定量のブタジエン系多相ポリマーのみで、初期剛性率が比較的低いポリブチレンテレフタレート (PBT) とブタジエン系多相ポリマーとのブレンドに、ノッチ付アイゾッド試験 (ASTM 6526) の非脆性破壊に関して、非常に改善された衝撃挙動を付与するとの、予想外の知見にある。

本発明の上記以外に目的、態様および利点は以下の説明から当業者には明らかとなろう。

(作用)

上述したように、ポリブチレンテレフタレート (PBT) は、本発明の熱可塑性ポリエステル組成物の少なくとも約20重量%の量が特に適当である。

またメチルメタクリレートと1,3-ブチレンジグリコールメタクリレートとから重合したシェルの含有してもよい。

特に好ましいブタジエン系多相複合ポリマーは、ローム、アンド・ハース社よりBR-653およびBR-680アクリロイドなる商品名で市販されているメタクリル化ブタジエンスチレンコポリマー組成物である。

本発明で使用するのに適した各種のブタジエン系多相ポリマーのより詳しい説明および具体例については、前述した本出願特許第 3,919,353; 4,034,013; 4,180,484および 4,393,153号を参照されたい。

本発明の組成物および成形品はさらに、ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1〜200重量%、好ましくは約60〜120重量%の芳香族ポリカーボネートもしくはポリアリレート (例、ビスフェノールA-イソフタレート-テレフタレートポリエステル) を含有してもよい。かかるポリカーボネートおよびポリアリレートの配合の

り、本発明の好適態様では少なくとも約80重量%の量で存在させる。特に好適なポリブチレンテレフタレートは、o-クロロフェノール中25℃で測定した固有粘度が約0.4〜1.0 dl/gのものである。

ブタジエン系多相複合ポリマーは、本発明の組成物中に、ポリブチレンテレフタレートに基づいて20重量%を超え、30重量%以下の量で存在させる。特に好ましくは、ブタジエン系複合多相ポリマーは、この範囲内の量で、しかもASTM 6526 ノッチ付アイゾッド衝撃試験で延性挙動を生ずるのに十分な量で存在させる。

本発明の組成物に使用する上記の多相複合ポリマーは、コア/シェルエラストマーと呼ばれることもあり、ブタジエン系ポリマーのコア相 (芯) を有する。典型的には、この多層複合ポリマーは、ポリブタジエンもしくはポリブタジエン/スチレンの弾性 (エラストマー性) コア相 (第1相) と、ポリメチルメタクリレートの熱可塑性シェル相 (外周の最終相) とを有している。これはまた、スチレンから重合した中間段階を有していてもよく、

効果は、ずっと少量の上記多相複合ポリマーで耐衝撃挙動を改善できることである。ポリカーボネートおよびポリアリレートのより詳しい説明と具体例は、それぞれ米国特許第 4,180,494および 4,221,844号を参照されたい。

本発明の組成物および成形品はさらに、ポリブチレンテレフタレートに基づいて約25重量%以下、より一般的には10重量%以下の量の適当な難燃剤 (例、デカブロモジフェニルエーテルと三酸化アンチモン) を含有していてもよく、また最終成品の望ましい特性に影響を及ぼさないその他の添加材料も比較少量であれば含有しうる。かかるその他の添加材料としては、具体的な使用組成物および目的の製品によっても異なってくるが、着色剤もしくは増白剤がある。ポリカーボネート、ポリアリレート、難燃剤、増白剤もしくは充填材以外のかかるその他の添加剤を配合する場合、これらは本発明の成形用組成物または最終製品の全体の約10重量%以下を占めるのが普通である。

本発明の組成物および製品は、慣用の種類およ

## 特開昭62-187759 (4)

び配合量の強化繊維もしくは不活性充填材をさらに含んでいてもよい。併添剤にあっては、ポリブチレンテレフタレートに基づいて約1～100重量%の量のガラス強化繊維を存在させる。不活性充填材を使用する場合、これはポリブチレンテレフタレートに基づいて約1～100重量%の量で一般に配合され、充填材としてはガラス砂、クレー、シリカ、ケイ酸塩、酸化物などが含まれる。

本発明の成形用組成物の製造にあっては、各級の成分を従来法により製造し、これを乾式ブレンドもしくは熔融ブレンド、押出機、加熱ロール、もしくはその他の種類の混合装置によるブレンドなどの任意の適当な方法でブレンドする。慣用のマスターバッチ法も使用できる。好適な製造およびブレンド技術は当該分野では周知であるので、これ以上詳しい説明は必要なかろう。

## (発明の効果)

本発明による組成物は、初級もしくは出発固有粘度が比較的低いPBT（特にPBTの粘度が約0.4～1.0 dl/gの範囲内というように1.0 dl/g以

下である場合）に優れた衝撃挙動を付与するのに特に有用である。この点で、本発明にかかる固有粘度が比較的低いPBTに対して特に顕著な結果を発現する。周知のように、固有粘度が高くなるほどPBTの製造コストは一般に高くなるので、低固有粘度のPBTの使用は経済的に有利である。したがって、本発明を利用すると、衝撃挙動の面で一般に使用可能と考えられていた範囲よりかなり低い固有粘度のPBTを使用して、PBT組成物を目的とする用途に使用することが可能となることが多い。

以下の実施例は、本発明の範囲を制限すること

なく本発明を例示するために挙げたものである。  
発明の要旨を特に明瞭にするため、全般的に、  
試験した各種組成物の衝撃挙動を評価するため

に、試験組成物の試料を射出成形して、標準のASTM試験片を製造した。試験片を次いでASTM試験法B-255に従って（結果に実質的に影響することのない温度条件の制御を行わない点を除いて）ノッチ付アイゾッド衝撃強度について試験した。

ここに報告したように試験した各試験片は、実

第1表

ノッチ付アイゾッド衝撃強度 (ft-lb/in)

	エラストマー (KH 653) (7)	ノッチ付 アイゾッド
対照	0	0.55
比較試験A	5	0.86
比較試験B	10	1.19
比較試験C	15	1.49
比較試験D	20	2.20
実施例1	25	2.22
実施例2	30	8.46

施例に記載のようにいくつかの異なるPBT組成物から調製した。各組成物の配合は、2.5インチ(6.3cm) ジョンソン押出機を使用して、次の条件下で行った：温度 260℃、圧力 500～2000psi (35～140 kg/cm<sup>2</sup>)、およびスクリーン回転数75～150 rpm。いずれの場合も、ペレット化された押出物を往復スクリーン式射出成形機で成形して、試験片を得た。

実施例中、「エラストマー」なる用語は、ローム・アンド・ハース社よりアクリロイド KH 653 および KH 680 として市販のブタジエン系多相重合ポリマーを意味する。

## 実施例1～4

本実施例のために、固有粘度 1.0 dl/g のポリブチレンテレフタレート (PBT) を利用し、さらに次の第1表に示した成分を含有する、いくつかの組成物を調製した。得られた各試料を、上記の方法でノッチ付アイゾッド衝撃強度について試験した。これらの試験結果も次の第1表に示す。

第2表

	エラストマー (KH 680) (3)	ノッチ付 アイゾッド
対照	0	0.55
比較試験B	10	1.26
比較試験P	15	1.82
比較試験C	20	3.60
実施例3	25	3.80/10.08
実施例4	30	13.18

— 延性破壊 —

## 特開昭62-187759 (5)

上の実施例は、本発明によりブタジエン系多相ポリマーラテックスを20%超、90重量%以下の量で使用するにより、PBT成形材料の衝撃挙動の向上に関して予想外の利点が得られることを示している。具体的には、ノッチ付アイゾッド試験での所望の改善である非脆性破壊が、20%超、30重量%以下のブタジエン系多相ポリマーの配合量で認められる。2種類の異なる挙動が存在すると考えられる。一つは、多相ポリマー含有量の増大に伴って断続的に起こる強靱化であり、もう一つは脆断破壊形式から引裂き点付近でかなりの降伏を伴った不完全な延性引裂きに變化するような多相ポリマー含有量で起こる超強靱化である。ASTM D526 試験法において、破壊が延性形式で起こると、試験棒の上部が捻じれてめくれ上がり、衝撃ハンマーの通過が可能となる。試験片の引裂き長さは試験棒の幅の90%未満であって、ASTM試験法では「破断なし」として分類される必要がある。この部分引裂きは、2、4 および16 ft.lbの衝撃範囲内で同様な破壊（同様な吸収エネルギーの値

で）を得ることにより衝撃ハンマーをぶつける結果として生じたものではないことが示される。上記の延性引裂き破壊で得られた数値は、脆性（破断）破壊形式において得られる数値と比較するのは適当でない。しかし、この数値は試験片に吸収されたエネルギーの尺度としては有用である。

以上に本発明をその特定の態様に関して説明したが、当業者には明らかなように、本発明の範囲内で各種の変更が可能であることは当然である。

出願人 セラニーズ・コーポレーション

代理人 弁理士 広 瀬 登 一